

# 1 EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

To-EP-145.  
7-9L7°+  
315341/5  
2008.2.14

PUBLICATION NUMBER : 09059074  
PUBLICATION DATE : 04-03-97

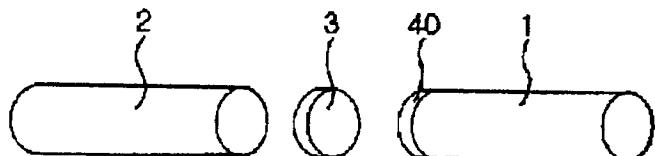
APPLICATION DATE : 21-08-95  
APPLICATION NUMBER : 07236097

APPLICANT : NGK SPARK PLUG CO LTD;

INVENTOR : ITO MASAYA;

INT.CL. : C04B 37/02 B23K 1/19 B23K 35/28

TITLE : PRODUCTION OF COMBINATION OF  
CERAMIC MEMBER WITH ALUMINUM  
MEMBER



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To enable the joining of an Al member to a ceramic member by forming a metallic layer consisting essentially of Al on the surface of the ceramic member and joining the Al member onto the resultant metallic layer with a brazing filler material, containing Cu and Si and consisting essentially of Al.

SOLUTION: A metallic layer, consisting essentially of Al and having  $\geq 0.08\mu\text{m}$  thickness is formed on the surface of a ceramic member and an Al member is then joined thereonto with a brazing filler material, containing 22.5-32.5wt.% Cu and  $\geq 5.9\text{wt.\%}$  Si and consisting essentially of Al (having  $\leq 584^\circ\text{C}$  melting point). Nonoxide ceramics (e.g.  $\text{Si}_3\text{N}_4$ ), oxide ceramics (e.g.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), oxynitride ceramics (e.g. sialon), etc., can be applied to the ceramic member. The method for producing a combination of the ceramic member 1 to the Al member 2 comprising forming the metallic layer 40 consisting essentially of Al on the surface of the ceramic member 1 and then joining the Al member 2 thereonto with the brazing filler material 3 consisting essentially of Al is shown in the figure.

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-59074

(43)公開日 平成9年(1997)3月4日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
C 04 B 37/02			C 04 B 37/02	B
B 23 K 1/19			B 23 K 1/19	B
35/28	310		35/28	310 A

審査請求 未請求 請求項の数8 FD (全6頁)

(21)出願番号 特願平7-236097

(22)出願日 平成7年(1995)8月21日

(71)出願人 000004547

日本特殊陶業株式会社

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号

(72)発明者 田中 智雄

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日本特殊陶業株式会社内

(72)発明者 伊藤 正也

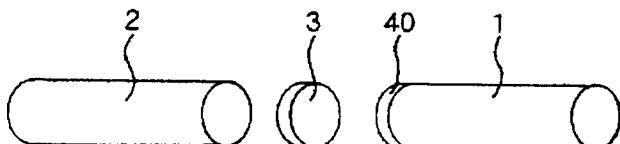
愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日本特殊陶業株式会社内

(54)【発明の名称】セラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法

(57)【要約】

【課題】 本願発明の課題は、セラミックス部材とアルミニウム部材を低融点のろう材を用いることによりアルミニウム部材を広範囲に選択でき、低温で容易に且つ高強度に接合する方法を提供することである。

【解決手段】 セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層を形成し、該金属層上にCu 22.5~32.5重量%及びSi 5.9重量%以下を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層を形成し、該金属層上にCu22.5~32.5重量%及びSi5.9重量%以下を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項2】 セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層を形成し、該金属層上にCu24.2~29.2重量%及びSi3.4~5.8重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項3】 セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層を形成し、該金属層上にCu26.0~27.6重量%及びSi3.9~5.7重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項4】 セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にCu22.5~32.5重量%及びSi5.9重量%以下を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項5】 セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にCu24.2~29.2重量%及びSi3.4~5.8重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項6】 セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にCu26.0~27.6重量%及びSi3.9~5.7重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項7】 前記ろう材にFe、Mg、Mn及びTiの群から選ばれる少なくとも1種が含まれていることを特徴とする請求項1~6のいずれかに記載のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項8】 前記金属層の厚さが0.08μm以上であることを特徴とする請求項1~7のいずれかに記載のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、セラミックス部材と、純アルミニウム部材又はアルミニウム合金部材（以下「アルミニウム部材」とも言う）との接合体の製造方

法に関し、構造部材等に好適に使用される接合体の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来技術】アルミニウム部材（鋳物材、展伸材等：融点460℃以上）は、種々の分野において利用が進んでおり、その諸特性を生かすべく、異種材料との複合化の試みがなされている。この異種材料の1つとしてセラミックス部材が挙げられろう付け接合による複合化が期待される。従来のろう付け接合法には、セラミックス部材とアルミニウム部材とをJISに規格されるろう材を用いることによって接合するものが知られている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかし、JISに規格されるろう材の融点は585℃以上（JIS-B-A4145：融点585℃、JIS-B-A4045：融点590℃）であり、この温度に近い融点を持つアルミニウム部材とセラミックス部材との接合は、加熱によりろう材を溶かし接合する時にアルミニウム部材も同時に溶けてしまい実質的に接合できなかった。また、仮に接合出来たとしてもその接合体は強度的に問題があり、実用上問題があった。従って、JISに規格されるろう材を用いて接合する手法は、比較的融点の高い展伸材（融点600℃以上）の一部にしか使用できず、融点の低い鋳物材においては、大半が接合は不可能であった。

【0004】そこで、本発明は、セラミックス部材とアルミニウム部材とを低融点のろう材を用いて接合することによりアルミニウム部材を広範囲に選択でき、低温で容易に且つ高強度に接合する製造方法を提供することを目的とする。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】その第1の手段は、セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層を形成し、該金属層上にCu22.5~32.5重量%及びSi5.9重量%以下を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。また、第2の手段は、セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層を形成し、該金属層上にCu24.2~29.2重量%及びSi3.4~5.8重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。また、第3の手段は、セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層を形成し、該金属層上にCu26.0~27.6重量%及びSi3.9~5.7重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。また、第4の手段は、セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にCu22.5~32.5重量%及びSi5.9重量%以下を含

みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。また、第5の手段は、セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にCu 24.2~29.2重量%及びSi 3.4~5.8重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。また、第6の手段は、その手段は、セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にCu 26.0~27.6重量%及びSi 3.9~5.7重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。前記手段の前記ろう材にFe、Mg、Mn及びTiの群から選ばれる少なくとも1種が含まれているセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法が好ましい。また、前記手段の前記金属層の厚さが0.08μm以上であるセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法が好ましい。

【0006】ここで、上記手段において、セラミックス部材の表面に金属層を形成する方法としては、蒸着、スパッタリング、メッキ等の方法がある。ここで「A1を主成分とする金属層」は、純粹なA1からなる金属層でもよいし、ろう材とのヌレ性が十分保つことができれば他の成分を含んだ金属層でもよい。他の成分としては、例えばSi、Cuである。ここで、「A1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層」とは、セラミックス部材の表面に2以上の層を形成し、少なくとも最上層がA1を主成分とする金属層であることを意味する。そして、最上層の下の層、即ち、「最上層がA1を主成分とする金属層」と「セラミックス部材」との間の中間金属層は、セラミックス部材と反応性良好な1層以上の金属層であることが好ましい。具体的には、Ti、Zr等の活性金属層が良い。また、本発明のセラミックス部材は、非酸化物セラミックスとして $\text{Si}_3\text{N}_4$ 、 $\text{SiC}$ 、 $\text{AlN}$ 、 $\text{TiN}$ 、 $\text{TiC}$ 等、酸化物セラミックスとして $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 等、酸窒化物セラミックスとしてサイアロン等又はこれらの複合材料、 $\text{Si}_3\text{N}_4-\text{TiN}$ 、 $\text{ZrO}_2-\text{TiN}$ 等が適用可能である。

#### 【0007】

【作用】上記第1及び4の手段の製造方法はCu 22.5~32.5重量%及びSi 5.9重量%以下を含みA1を主成分とするろう材を用いて接合するため、そのろう材の融点が584°C以下とJIS規格のろう材の融点より低くなり、その結果この温度以上の固相線温度を有するアルミニウム部材（鋳造材、展伸材）やセラミックス部材の接合面に形成したA1を主成分とする金属層に対してヌレ性が向上し高強度な接合が可能となる。また、上記第2及び5の手段の製造方法はCu 24.2~

29.2重量%及びSi 3.4~5.8重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いて接合するため、そのろう材の融点が560°C以下とJIS規格のろう材の融点より低くなり、その結果この温度以上の固相線温度を有するアルミニウム部材（鋳造材、展伸材）やセラミックス部材の接合面に形成したA1を主成分とする金属層に対してヌレ性が向上し高強度な接合が可能となる。更にまた、上記第3及び6の手段の製造方法はCu 26.0~27.6重量%及びSi 4~6.5重量%を含みA1を主成分とするろう材を用いて接合するため、そのろう材の融点が540°C以下とJIS規格のろう材の融点より低くなり、その結果この温度以上の固相線温度を有するアルミニウム部材（鋳造材、展伸材）やセラミックス部材の接合面に形成したA1を主成分とする金属層に対してヌレ性が向上し高強度な接合が可能となる。

【0008】前記各手段の前記ろう材にFe、Mg、Mn及びTiの群から選ばれる少なくとも1種が含まれていると、ろう材の融点の低下、ヌレ性の向上、時効硬化促進等の効果が得られ、ひいては接合強度を向上させることができる。また、セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層を形成することにより、セラミックス部材の表面とろう材とのヌレ性が向上しアルミニウム部材との接合強度を高めることができる。また、セラミックス部材の表面にA1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成することにより、セラミックス部材の表面とろう材とのヌレ性が向上しアルミニウム部材との接合強度を高めることができる。更に、「A1を主成分とする金属層」の厚さが0.08μmより薄い場合には接合強度は低いが、0.08μm以上とすることにより高強度な接合体を得ることができる。それはA1を主成分とする金属層が、接合時にセラミックス部材の表面とろう材とのヌレ性を大きくする。但し、5μmを越えるような極端にA1を主成分とする金属層を厚くすることは、接合体の製造コストを高くするため好ましくない。また、A1を主成分とする金属層単独であってもセラミックス部材との密着強度は高いものであるが、A1を主成分とする金属層とセラミックス部材との間にセラミックス部材と反応性良好な1層以上の中間金属層を介在させることにより、セラミックス部材とA1を主成分とする金属層の密着強度を向上させ、ひいては、接合強度を高めこととなる。例えば、Ti層、Zr層、Mo+Mn層等の中間金属層として一層以上介在させることが好ましい。

#### 【0009】

【発明の実施の形態】本発明のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法を図1と図2を用いて説明する。図1は、本発明の一の実施例であるセラミックス部材1の表面にA1を主成分とする金属層40を形成し、該金属層40上にA1を主成分とする所定のろう材3を用いてアルミニウム部材2を接合するセラミッ

クス部材1とアルミニウム部材2との接合体の製造方法の接合する直前の状態を表す。図2は、本発明の他の実施例であるセラミックス部材1の表面にA1を主成分とする金属層40が最上層となる複数の層4を形成し、該金属層40上に所定のろう材を用いてアルミニウム部材2を接合するセラミックス部材1とアルミニウム部材2との接合体の製造方法の接合する直前の状態を表す。A1を主成分とする金属層40とセラミックス部材1との間には、複数の層4の一部である中間金属層41がある。ここで中間金属層41が「A1を主成分とする層」である場合には結局セラミックス部材1上には、A1を主成分とする金属層のみ存在することとなり、上記一の製造方法と同じ製造方法となる。

## 【0010】

## 【実施例】

	No.	アルミニウム 部材 JIS	セラミックス 部材	金 屬 層		ろう材の組成(重量%)				ろう材 融点 (°C)	接合 温 度 (°C)	引張り 強度 (kgf/mm <sup>2</sup> )	
				元 素	厚さ(μm)	形成方法	A1	Si	Cu	その他			
実施例	1	A1060	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	A1	0.08	スパッタ	残 部	0.45	22.5	0.1 Mn	584	590	14.3
"	2	A5083	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	"	0.2	"	"	2.35	28.5	0.2 Fe	547	550	20.3
"	3	"	ZrO <sub>2</sub>	"	0.5	"	"	3.73	32.0		540	"	25.5
"	4	ADC10	"	"	1.0	"	"	5.18	26.8	0.3 Mg	520	530	27.2
"	5	A1060	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	"	1.5	蒸 着	"	0.63	23.8		582	590	13.9
"	6	"	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	"	2.0	"	"	3.83	24.9	0.1 Ti	548	560	14.7
"	7	A5083	ZrO <sub>2</sub>	"	2.5	"	"	3.73	32.0		540	"	26.3
"	8	"	"	"	3.0	"	"	5.18	26.8	0.1 Ti 0.1 Mg	520	"	25.8
比較例	9	A1050	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	"	0.08	スパッタ	"	10.0	0.25	0.1 Ti	590	600	5.6
"	10	A5083	ZrO <sub>2</sub>	"	0.5	"	"	8.05	16.93		552	560	12.3
"	11	A1050	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	"	1.5	蒸 着	"	7.5	0.25	0.1 Ti 0.1 Mn	615	620	7.2
"	12	"	"	"	3.0	"	"	10.0	4.0	0.1 Mg 0.1 Mn	585	590	6.4

No.9 JIS-BA4045

No.11 JIS-BA4343

No.12 JIS-BA4145

【0012】そして、アルミニウム部材2、ろう材3、セラミックス部材1の順に重ね合わせ、治具に固定し、炉内に配置、不活性ガス雰囲気にてろう材融点近傍で30分の保持を行い接合を行い、接合体を得た。接合後、JISの4号試験片に従い、引っ張り試験片に仕上げ試験に供した。結果を表1に示す。表1に示す様に、本発明の製造方法により得られた接合体は、高い接合強度を有していた。具体的な破断の形態は、まず接合界面のアルミニウム部材2が変形し、次にそのアルミニウム部材

2とセラミックス部材1の界面から破断した。その破面は、セラミックス部材1の破断面にアルミニウム部材2が付着した形となった。ろう材による接合強度は、アルミニウム部材2又はセラミックス部材1自身の強度と同等な強度を有していた。これに対し、比較例の製造方法による接合体は、接合していないかそれとも起点、破断の進行は接合界面又は、ろう材3層中であり接合強度は低かった。

## 【0013】—実験例2—

表2に示す種々のセラミックス部材1（直径18mm、長さ75mm）及び種々のアルミニウム部材2（直径18mm、長さ75mm）を準備し、表2に示すろう材3を用いて接合する。アルミニウム部材2は、JISに規格される各種アルミニウム部材鍛物材を用いた。各セラミックス部材1の表面には、予めA1を主成分とする金属層40が最上層となる複数の層4が形成される。具体的には、表2に示す様にセラミックス部材1表面に中間

金属層41を表2に示す形成方法で形成後、最上層となる金属層40を形成する。別途、ろう材3は、表2に示される組成を溶解し回転するCu製水冷ロール上に流すことにより（液体急冷法）、箔（直径18mm、厚さ100μm）を準備した。

## 【0014】

【表2】

No.	JIS 規格 番号	セラミックス部材 JIS	中間金属層 元素 厚さ(μm)	最上層の金属層			ろう材の組成(重量%)			ろう材 融点 (℃)	接合 温度 (℃)	引張り 強度 (kgf/mm <sup>2</sup> )	
				元素	厚さ(μm)	形成方法	元素	厚さ(μm)	形成方法				
実施例 21	Al060	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	Ti-Mo 各0.1	Al	0.08	スパッタ	Al	0.45	スパッタ	Si	22.5	0.1 Mn	584
"	22	A5083	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	"	"	"	0.2	"	"	Si	28.5	0.2 Re	547
"	23	"	ZrO <sub>3</sub>	"	"	"	0.5	"	"	Cu	32.0	"	540
"	24	ADC10	"	W	20	焼きつけ	1.0	"	"	その他	5.18	0.3 Mg	520
"	25	Al060	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	Ti-Mo 各0.1	蒸着	"	1.5	蒸着	"	3.73	23.8	"	582
"	26	"	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Mo-Mn 20	焼きつけ	"	2.0	"	"	0.63	24.9	0.1 Ti	548
"	27	A5083	ZrO <sub>3</sub>	Ti-Mo 各0.1	蒸着	"	2.5	"	"	3.73	32.0	"	540
"	28	"	"	Ag-Cu-Ti 4-2-1	20	ろう材	3.0	"	"	5.18	26.8	0.1 Ti 0.1 Mg	520
比較例 29	Al050	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>	Ti-Mo 各0.1	スパッタ	"	0.08	スパッタ	"	10.0	0.25	0.1 Ti	590	600
"	30	A5083	ZrO <sub>3</sub>	"	"	0.5	"	"	8.05	16.93	"	552	560
"	31	Al050	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	"	蒸着	"	1.5	蒸着	"	7.5	0.25	0.1 Ti 0.1 Mn	620
"	32	"	"	Mo-Mn 20	焼きつけ	"	3.0	"	"	10.0	4.0	0.1 Mg 0.1 Mn	585
													5.9

No.29 JIS-B44045 No.31 JIS-B44343 No.32 JIS-B44145

【0015】そして、アルミニウム部材2、ろう材3、セラミックス部材1の順に重ね合わせ、治具に固定し、炉内に配置、不活性ガス雰囲気にてろう材融点近傍で3

0分の保持を行い接合を行い、接合体を得た。接合後、JISの4号試験片に従い、引っ張り試験片に仕上げ試験に供した。結果を表2に示す。表2に示す様に、本発

明の製造方法により得られた接合体は、高い接合強度を有していた。具体的な破断の形態は、まず接合界面のアルミニウム部材2が変形し、次にそのアルミニウム部材2とセラミックス部材1の界面から破断した。その破面は、セラミックス部材1の破断面にアルミニウム部材2が付着した形となった。ろう材による接合強度は、アルミニウム部材2又はセラミックス部材1自身の強度と同等な強度を有していた。これに対し、比較例の製造方法による接合体は、接合していないかそれとも起点、破断の進行は接合界面又は、ろう材3層中であり接合強度は低かった。

## 【0016】

【発明の効果】本発明による製造方法を用いることにより、特に融点が低くろう付けが困難なアルミニウム部材鍛物材とセラミックス部材とが接合できる。従って、接合部材としてのアルミニウム部材は、展伸材も含め非常に広範囲に選択することができ、且つ高強度なセラミッ

クス部材とアルミニウム部材との接合体が得られることとなる。

## 【図面の簡単な説明】

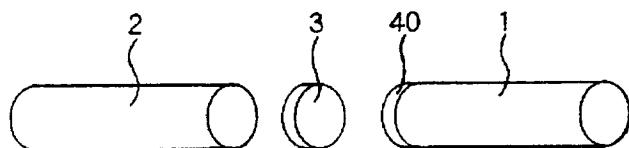
【図1】本発明の実験例1のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法の接合する直前の状態を示す図である。

【図2】本発明の実験例2のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法の接合する直前の状態を示す図である。

## 【符号の説明】

- 1 . . . . セラミックス部材
- 2 . . . . アルミニウム部材
- 3 . . . . ろう材
- 4 . . . . A1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層
- 40 . . . . A1を主成分とする金属層
- 41 . . . . 中間金属層

【図1】



【図2】

